

K1
628.16
214
d.



LAPORAN PENELITIAN DOSEN MUDA

DEGRADASI ELEKTROKATALITIK
FENOL DALAM AIR LIMBAH

Oleh:

WH Rahmanto
Arnell
Parsaoran Slahaan
Gunawan
M. Cholid Junaidi

Dibiayai Oleh Dana DIK Rutin Universitas Diponegoro
Sesuai Perjanjian Pelaksanaan Penelitian
Tanggal 4 Agustus 1997, Nomor 3157/PT09.H2/N/1997

FAKULTAS MATEMATIKA DAN ILMU PENGETAHUAN ALAM
UNIVERSITAS DIPONEGORO SEMARANG

Maret 1998

**LEMBAR IDENTITAS DAN PENGESAHAN
LAPORAN AKHIR HASIL PENELITIAN DOSEN MUDA**

1. a. Judul Penelitian : Degradasi Elektrokatalitik
Fenol Dalam Air Limbah
b. Macam Penelitian : Penelitian Dasar
c. Kategori : I

2. Ketua Peneliti :
a. Nama Lengkap dan Gelar : Drs. WH Rahmanto, M.Si
b. Jenis Kelamin : Laki-laki
c. Pangkat/Golongan/NIP : Penata Muda/IIIa/131672954
d. Jabatan Fungsional : Asisten Ahli
e. Fakultas/Jurusan : MIPA/Kimia
f. Universitas : Diponegoro
g. Bidang Ilmu yang diteliti: Kimia Fisik - Elektrokimia

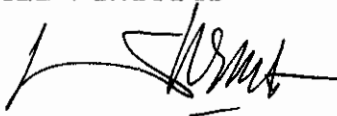
3. Jumlah Tim Peneliti : 5 orang

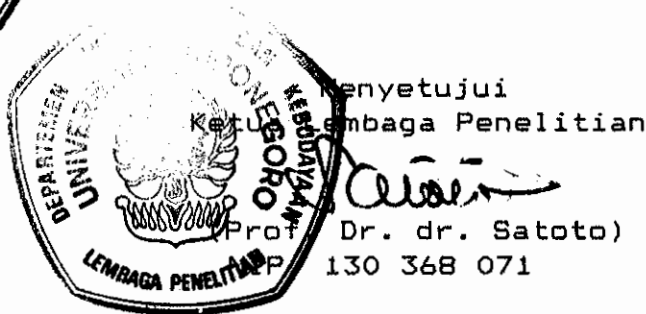
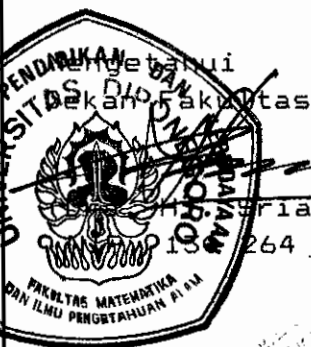
4. Lokasi Penelitian : Lab. RISTEK Kimia-Fisik

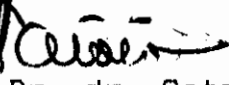
5. Jangka Waktu Penelitian : 6 bulan

6. Biaya yang diperlukan : Rp 3.000.000,-
(Tiga juta rupiah)

Semarang, 03 Maret 1998
Ketua Peneliti


(Drs. WH Rahmanto, M.Si)
NIP. 131 672 954



Menyetujui
Ketua Lembaga Penelitian

(Dr. dr. Satoto)
130 368 071

DEGRADASI ELEKTROKATALITIK FENOL DALAM AIR LIMBAH

(WH Rahmanto, Arnelli, Parsaoran Siahaan, Gunawan, M. Cholid Junaidi: 1998. 49 halaman)

Dari penelusuran pustaka, didapatkan bahwa pengolahan limbah fenol sukar dilakukan. Oksidasi memakai ozon maupun hidrogen peroksida hanya memberikan persen konversi kurang dari 30 %. Kalau dikatalisis dengan garam fero sulfat, ion besinya justru mencemari air. Telah ada usaha untuk mengoksidasi fenol secara elektrolisis dan menghasilkan persen konversi di atas 90 %. Oksida SnO_2 yang mempunyai sifat katalitik dilapiskan ke batang titanium, kemudian dipasang sebagai anoda di dalam sel elektrolisis. Namun, elektroda platina dan titanium yang digunakan sangat mahal kalau diterapkan di lapangan berskala besar. Berarti elektrodanya mesti diganti dengan bahan-bahan yang lebih murah. Karbon yang diketahui punya sifat sebagai penghantar listrik yang baik, agaknya dapat dimanfaatkan sebagai elektroda. Demikian juga oksida Al_2O_3 , yang diketahui punya sifat sebagai suport yang bagus bagi aktivitas katalis, bisa juga dimanfaatkan sebagai bahan elektroda. Akan tetapi, kemampuan kedua contoh elektroda tersebut untuk mengoksidasi fenol dalam air limbah belum diketahui.

Penelitian bertujuan menentukan kemampuan elektroda katalis $\text{SnO}_2/\text{Al}_2\text{O}_3$ dan SnO_2 /Karbon untuk mengoksidasi fenol di dalam larutan model dan air limbah. Kemampuan diungkapkan ke dalam parameter persen konversi yang dapat diukur.

Penelitian dilaksanakan melalui 2 tahap, yaitu tahap preparasi anoda katalis, dilanjutkan tahap pengujiannya. Katalis disiapkan lewat metode kopresipitasi dengan suport aluminium oksida dan impregnasi ke dalam suport karbon serta aluminium oksida. Katalis yang dikemas menjadi elektroda diuji dengan cara menerapkannya sebagai anoda untuk oksidasi elektrolitik fenol, baik dalam larutan model maupun air limbah. Pengujian tersebut dilakukan menurut metode elektrolisis fasa alir dan elektrolisis tanpa aliran. Reaktor model Raney dipergunakan untuk melakukan elektrolisis fasa alir maupun tanpa aliran. Berkurangnya konsentrasi fenol setelah elektrolisis, relatif terhadap konsentrasi awal yang divariasi, diikuti via metode

spektrofotometri sinar tampak. Sebelum absorbansinya diukur memakai spektrofotometer UV-Vis, fenol direaksikan terlebih dahulu dengan 4-aminoantipirin (4-AAP) dan kalium ferisianida supaya menjadi senyawa kompleks. Data absorbansi A diubah ke konsentrasi C berdasarkan metode kalibrasi kurva standar. Selanjutnya dikomparasikan ke konsentrasi awal untuk mendapatkan persen konversi. Data kemudian diolah memakai metode statistik sederhana.

Hasil eksperimen di laboratorium memperlihatkan bahwa persen konversi fenol sangat beragam. Dengan memvariasi konsentrasi larutan fenol model menjadi 2,50, 5,00, 7,50 maupun 10,0 ppm beserta kuat arus sebesar 0,01, 0,05 dan 1,10 ampere, harga yang didapatkan berkisar antara 26,23 - 30,09 % untuk pelet tanpa aliran dan 25,38 - 29,27 % bila dengan aliran. Anoda katalis serbuk memberikan 28,23 - 39,52 % tanpa aliran dan 30,11 - 38,19 % untuk proses dengan aliran. Kalau dilapiskan pada permukaan batang karbon, katalis menghasilkan konversi 31,79 - 51,88 % tanpa aliran. Dengan aliran mampu memberikan harga 35,15 - 59,15 %. Terhadap fenol limbah, kemasan pelet memberikan 20,78 - 22,40 % tanpa aliran dan 23,75 - 26,09 % dengan aliran. Kemasan serbuk 24,63 - 28,17 % (tanpa aliran dan 24,05 - 27,17 % (sistem alir). Batang karbon berlapis katalis 28,75 - 32,52 % (tanpa aliran) serta 31,40 - 34,98 % (dengan aliran). Persen konversi untuk limbah, pada kondisi yang sama, lebih rendah dibanding untuk larutan model.

Berdasarkan uraian mengenai fakta-fakta yang digali melalui eksperimen di laboratorium, dapat ditarik kesimpulan sebagai berikut. Persen konversi fenol melalui elektrokatalisis sangat tergantung pada faktor kuat arus serta kemasan elektrodanya. Tetapi, pola ketergantungannya belum kelihatan jelas. Elektroda yang terbaik adalah batangan-batangan yang berlapiskan bahan katalis dan degradasi fenolnya dilaksanakan melalui elektrolisis fasa alir.

Penelitian yang penulis kerjakan masih belum matang. Penelitian yang menangani masing-masing parameter seperti kuat arus, konsentrasi awal serta preparasi, berikut kemasan elektroda, satu per satu secara matang masih harus dilaksanakan. Banyak

sekali parameter yang harus diuji. Untuk sistem elektrolisis antara lain adalah variasi potensial listrik terpasang untuk mendapatkan karakter volt-amper, pengaruh zat-zat selain fenol terhadap karakter volt-amper, laju aliran, konsentrasi awal reaktan dan luas permukaan elektroda. Yang menyangkut elektroda katalis bisa meliputi polaritas yang diukur dengan overpotensial; juga kristalinitas, porositas, distribusi pori, keasaman dan selektivitasnya.

(Kimia, Fakultas Matematika dan Ilmu Pengetahuan Alam, Universitas Diponegoro, Kontrak Nomor: 3157/PT09.H2/N/1997)

ELECTROCATALYTIC DEGRADATION OF PHENOL IN THE WASTEWATER

WH Rahmanto, Arnelli, Parsaoran Siahaan,
Gunawan, M. Cholid Junaidi
Faculty of Mathematic and Science

The treatment of phenol in wastewater found, from literature, to be an elaborate effort. Oxidation by either ozone or hydrogen peroxide give conversion percent less than 30 %. If that degradation was catalyzed by ferrous sulfate salt, the ferrous ion will take part in water as a new pollutant. There is an effort to oxidise phenol by mean of electrolysis and give good result, that is 90 %. The oxide, SnO_2 , having catalytic properties piled up to titanium metal bar and than constructed as anode in the electrolysis cell with the platinum coil covered in ceramic material utilized as a cathode. However, platinum and titanium employed as electrode are for in very expensive if applied on large scale field. That is meaning that the electrode must be replace by more decrease material. Carbon possessing properties as the electrically good conductor probably can be utilized as an electrode. The Al_2O_3 oxide, in such a manner, known having properties as a good support for catalysts action may be used as an electrode material. However, capability of those examples of electrode in oxidation of phenol in the wastewater no known yet.

The aim of the experiment is determining the capability of catalytically $\text{SnO}_2/\text{Al}_2\text{O}_3$ and $\text{SnO}_2/\text{Karbon}$ electrode in the oxidation of either phenol in prepared model solution and in wastewater. The capability was expressed in measurable term of conversion percent.

The experiment carried out in 2 stage, that is catalytical anode preparation continued by electrocatalytic performance testing. The catalysts prepared according to coprecipitation of precursor with alumina support and impregnation into either the alumina and carbon. The catalyst packed as an electrode tested as an anode in electrolytically oxidation of either phenol in the prepared model solution and in wastewater. The testing worked out in either flow and non-

flow electrolysis manner. Raney reactor was employed in that electrolysis. Dissapearance of phenol caused bay electolysis was monitored by UV-Vis Spectrophotometer at wavelength 505 nanometer. In advance of absorbance measuring phenol reacted by 4-aminoantipyrine in precence of potassium ferricianide in order to produce complex compound. The absorbance data A transferred to concentration values C based on standard curve calibration methods, and then compared to initial concentrations to get the conversion percent. The conversion percent data then worked out in according to simple statistical methods.

The experimental result show the so many variety of the conversion percent value. By varying concentration of prepared model phenol sulation to be 2.50, 5.00, 7.50 and 10 ppm, under current of 0.01, 0.05 and 0.10 A, obtained that values distributed from 26.23 % to 30.09 % (pellete, non-flow) and 25.38 - 29.27 % (pellete, flow). Elektrocatalyst powder give 28.23 - 39.52 % (non-flow) and 30.11 - 38.19 % (flow). Catalysts, if piled up to carbon bar, resulting 31.79 - 51.88 % (non-flow) and 35.15 - 59.15 % (flow). Of the waste treating pellete packed electrocatalyst give the result 20.78 - 22.40 percent (non-flow) and 23.75 - 26.09 % (flow). Powder packed give 24.63 - 28.17 % (non-flow) and 24.05 - 27.17 % (flow). Conversion percent resulting from the SnO_2 piled carbon bar are 28.75 - 32.52 (non-flow), and 31.40 - 34.98 % (flow). Conversion percent from waste treatment, at the same conditions, less than result from prepared model solution.

Conclusions have been drawn from the experimental facts that conversion percent of phenol via electrocatalysis depend on the current and initial concentration factors. However, the dependence pattern no clear yet. The best electrodes are carbon bar which piled up with catalyst material and that degradation of phenol carried out in flow-electrolysis modes.

The research no true-brad yet; each parameters such as electric current, initial concentration, preparation condition and process, and electrode packing must be handled, one by one. It is so many parameters must be tested. For electrolysis, variation in applied electric potential to find the

volt-ampere characteristics, presence of other species than phenol effects to volt-ampere characteristics, flow rate of the electrolysis, initial concentration and surface area of the electrode, for example must be examined in the detailed manner; as well as overpotential, crystallinities, porosity, porous distribution, acidity, and selectivities of electrodes.

(Chemistry Department, Faculty of Science and Mathematics, Diponegoro University, Semarang; under contract No.: 3157/PT09.H2/N/1997).

PENGANTAR

Penelitian yang hasilnya penulis tuangkan ke dalam laporan ini berada di kawasan Elektrokimia Molekuler. Penulis bertujuan mendapatkan gambaran awal mengenai kemampuan suatu katalis oksida logam hasil preparasi, yang kemudian dikemas menjadi elektroda, untuk melangsungkan proses-proses kimiawi di permukaannya menurut kaidah-kaidah elektrokimia. Informasi yang penulis gali dari eksperimen masih belum memberikan gambaran yang jelas mengenai kemampuan tersebut. Yang pasti, kemampuan elektrokatalis tersebut sangat ditentukan oleh sekian banyak faktor yang terlibat ketika preparasi dilakukan. Lebih lanjut, bersama-sama dengan sejumlah faktor yang masuk sewaktu proses elektrokimiawi dilangsungkan, kemampuan elektrokatalis akan sangat menentukan besarnya efisiensi reaksi. Faktor-faktor tersebut hendaknya diselidiki lebih terperinci dan matang.

Walau demikian, apapun yang telah penulis peroleh dapat ditempatkan sebagai batu loncatan untuk merancang penelitian lanjut. Banyak pihak yang telah menyumbangkan peran penting bagi keberhasilan penelitian ini. Antara lain adalah Ketua LEMLIT UNDIP, Prof. Dr. dr. Satoto, beserta stafnya yang telah membimbing dan mengusahakan dana bagi penelitian melalui kontrak bernomor 3157/PT09.H2/N/1997; Drs. Mustafid, M.Eng, PhD, sebagai PD I FMIPA maupun pribadi, Drs. Damin Sumardjo, Drs. Herman S.I (Ka.TU FMIPA), Yani Kurniawan (Karyawan Lab. RISTEK Kimia Fisik - MIPA), Dodo Dwi Herwanto (Karyawan Lab. Kimia Fisik - MIPA UGM), serta Munadi dan Yohan Hidayat atas info penelitiannya yang amat berharga. Rasanya kurang pantas kalau penulis tak menyampaikan terima kasih kepada semuanya.

Penulis

SISTEMATIKA LAPORAN AKHIR
HASIL PENELITIAN DOSEN MUDA

LEMBAR IDENTITAS DAN PENGESAHAN	i
RINGKASAN DAN SUMMARY	ii
PENGANTAR	viii
DAFTAR ISI	ix
DAFTAR TABEL	x
I. PENDAHULUAN	1
I.1. Latar Belakang	1
I.2. Rumusan Masalah	1
I.3. Tujuan Penelitian	2
I.4. Manfaat Penelitian	3
II. TINJAUAN PUSTAKA	4
II.1. Penerapan Konsep Elektrokimia	4
II.2. Oksidasi Fenol	5
II.3. Sel Elektrolisis	5
II.4. Reaksi Elektrokatalitik	6
II.5. Elektroda	6
II.6. Hipotesis	7
III. METODE PENELITIAN	8
III.1. Bahan dan Alat	8
III.2. Cara Kerja	9
IV. HASIL DAN PEMBAHASAN	13
IV.1. Konsentrasi Larutan Stok	14
IV.2. Konsentrasi Larutan Fenol Baku	15
IV.3. Faktor Konsentrasi Awal Larutan	18
IV.4. Faktor Kuat Arus Terpasang	19
IV.5. Kemasan Elektroda	21
IV.6. Faktor Kimiawi	22
IV.7. Faktor Laju Alir	22
V. KESIMPULAN DAN SARAN	27
V.1. Kesimpulan	27
V.2. Saran	28
DAFTAR PUSTAKA	29
LAMPIRAN	30

DAFTAR TABEL

Tabel A.1	Absorbansi larutan stok	30
Tabel A.2	Resistansi Katalis	30
Tabel A.3.a	Absorbansi larutan fenol, anoda pelet, tanpa aliran	31
Tabel A.3.b	Absorbansi larutan fenol, anoda serbuk, tanpa aliran	31
Tabel A.3.c	Absorbansi larutan fenol, anoda karbon, tanpa aliran	32
Tabel A.3.d	Absorbansi limbah fenol, anoda pelet, tanpa aliran	32
Tabel A.3.e	Absorbansi limbah fenol, anoda serbuk, tanpa aliran	33
Tabel A.3.f	Absorbansi limbah fenol, anoda karbon, tanpa aliran	33
Tabel A.4.a	Absorbansi larutan fenol, anoda pelet, dengan aliran	34
Tabel A.4.b	Absorbansi larutan fenol, anoda serbuk, dengan aliran	34
Tabel A.4.c	Absorbansi larutan fenol, anoda karbon, dengan aliran	35
Tabel A.4.d	Absorbansi limbah fenol, anoda pelet, dengan aliran	35
Tabel A.4.e	Absorbansi limbah fenol, anoda serbuk, dengan aliran	36
Tabel A.4.f	Absorbansi limbah fenol, anoda karbon, dengan aliran	36
Tabel B.3.a	Konsentrasi larutan fenol, anoda pelet, tanpa aliran	37
Tabel B.3.b	Konsentrasi larutan fenol, anoda serbuk, tanpa aliran	37
Tabel B.3.c	Konsentrasi larutan fenol, anoda karbon, tanpa aliran	38
Tabel B.3.d	Konsentrasi limbah fenol, anoda pelet, tanpa aliran	38
Tabel B.3.e	Konsentrasi limbah fenol, anoda serbuk, tanpa aliran	39
Tabel B.3.f	Konsentrasi limbah fenol, anoda karbon, tanpa aliran	39
Tabel B.4.a	Konsentrasi larutan fenol, anoda pelet, dengan aliran	40
Tabel B.4.b	Konsentrasi larutan fenol, anoda serbuk, dengan aliran	40

Tabel B.4.c	Konsentrasi larutan fenol, anoda karbon, dengan aliran	41
Tabel B.4.d	Konsentrasi limbah fenol, anoda pelet, dengan aliran	41
Tabel B.4.e	Konsentrasi limbah fenol, anoda serbuk, dengan aliran	42
Tabel B.4.f	Konsentrasi limbah fenol, anoda karbon, dengan aliran	42
Tabel C.3.a	Persen konversi larutan fenol, anoda pelet, tanpa aliran	43
Tabel C.3.b	Persen konversi larutan fenol anoda serbuk, tanpa aliran	43
Tabel C.3.c	Persen konversi larutan fenol, anoda karbon, tanpa aliran	44
Tabel C.3.d	Persen konversi limbah fenol, anoda pelet, tanpa aliran	44
Tabel C.3.e	Persen konversi limbah fenol, anoda serbuk, tanpa aliran	45
Tabel C.3.f	Persen konversi limbah fenol, anoda karbon, tanpa aliran	45
Tabel C.4.a	Persen konversi larutan fenol, anoda pelet, dengan aliran	46
Tabel C.4.b	Persen konversi larutan fenol, anoda serbuk, dengan aliran	46
Tabel C.4.c	Persen konversi larutan fenol, anoda karbon, dengan aliran	47
Tabel C.4.d	Persen konversi limbah fenol, anoda pelet, dengan aliran	47
Tabel C.4.e	Persen konversi limbah fenol, anoda serbuk, dengan aliran	48
Tabel C.4.f	Persen konversi limbah fenol, anoda karbon, dengan aliran	48

BAB I

PENDAHULUAN

I.1 Latar Belakang

Salah satu beban pencemaran yang harus diatasi sebaik-baiknya adalah pencemaran oleh senyawa fenol. Senyawa fenol merupakan pencemar lingkungan perairan yang bersifat toksik. Senyawa tersebut merupakan buangan yang berasal dari berbagai macam industri, termasuk pengilangan-pengilangan minyak bumi (Comninellis & Pulgarin 1993, Munadi dkk 1997, Hidayat dkk, 1997). Di wilayah Semarang dan sekitarnya, fenol yang larut dalam air tidak hanya dibuang oleh pabrik-pabrik saja, melainkan bisa juga oleh berbagai laboratorium kimia. Fenol yang terbangun dan masuk selokan tentu akan mengalir ke parit dan sungai, yang akhirnya bermuara ke laut atau juga tambak-tambak udang/ikan di wilayah pantai utara. Mungkin saja terjadi, fenol terserap oleh tubuh ikan, udang dan organ tetumbuhan pantai/laut. Karena fenol bersifat toksik, maka pembersihan fenol yang ada di dalam perairan merupakan kepentingan yang sangat krusial. Apabila fenol dapat dihilangkan, beban pencemaran bagi perairan pantai utara Semarang dan sekitarnya dapat dikurangi.

I.2 Rumusan Masalah

Penanganan fenol bisa dilakukan melalui dua alternatif, yakni melalui pengambilan kembali ataupun melalui perombakan menjadi zat-zat lain yang lebih aman. Tetapi muncul masalah-masalah sebagai berikut.

1. Pengambilan kembali

Melalui ekstraksi berkesinambungan, fenol dapat diambil

dari buangan sebelum dilepas ke parit/sungai. Akan tetapi kadar fenol dalam limbah biasanya tidak terlampau besar. Berarti, pengambilan fenol kembali bukan merupakan penyelesaian atas masalah tersebut secara ekonomis. Jadi, akan lebih baik bila fenol didegradasi saja menjadi produk reaksi yang tidak mencemari dan membahayakan lingkungan.

2. Degradasi fenol

Fenol dapat dioksidasi secara aman mempergunakan hidrogen peroksida atau ozon, menjadi gas karbon dioksida dan air yang tak mencemari lingkungan. Akan tetapi, efisiensinya cukup rendah, yang menurut Hayek dan Dore (Comninellis & Pulgarin 1993) hanya sekitar 30 % saja.

3. Pemakaian zat bantu

Garam besi (II) sulfat bisa dibubuhkan untuk mempertinggi persen konversi fenol. Dengan cara ini Munadi dkk (1997) berhasil merombak fenol dengan persen konversi 94,16 %. Akan tetapi, penambahan garam tersebut ke dalam air limbah sama saja dengan mengganti limbah fenol menjadi limbah besi.

Masalah-masalah tersebut di atas akan diatasi dengan jalan menerapkan metode elektrokatalitik yang diperkirakan dapat menghasilkan efisiensi degradasi jauh lebih tinggi dan aman.

I.3 Tujuan Penelitian

Tujuan dari penelitian yang penulis lakukan adalah mendapatkan elektroda yang sekaligus bertindak sebagai katalis berikut metode degradasi fenol yang dapat menghasilkan efisiensi lebih tinggi lagi. Apabila efisiensi degradasi cukup tinggi lagi aman, maka beban pencemaran pun dapat dikurangi.

Mula-mula elektroda katalis disiapkan di laboratorium, melalui metode kopresipitasi dan impregnasi. Elektrokatalis

yang dihasilkan lalu diterapkan untuk mendegradasi fenol di dalam fasa air menurut mekanisme elektrolisis. Konsentrasi fenol sebelum dan sesudah elektrolisis dimonitor melalui metode spektrofotometri cahaya tampak. Persen konversi, yang didefinisikan sebagai nisbah antara konsentrasi fenol yang terdegradasi dengan yang tersedia untuk didegradasi, dipakai sebagai parameter untuk menilai kemampuan elektroda katalis dan keberhasilan metode elektrokatalisis.

I.4 Manfaat Penelitian

Penelitian diharapkan menghasilkan manfaat, yang berupa dihasilkannya elektroda yang mempunyai sifat sebagai katalis sekaligus, berikut metode preparasinya, serta metode pengolahan limbah berdasarkan prinsip-prinsip fisikokimiawi.